

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : **60-133662**

(43)Date of publication of application : **16.07.1985**

(51)Int.Cl.

H01M 4/88

(21)Application number : **58-241624**

(71)Applicant : **FUJI ELECTRIC CORP RES & DEV LTD**

(22)Date of filing : **21.12.1983**

(72)Inventor : **SAKURAI MASAHIRO**

## (54) METHOD FOR MANUFACTURING GAS DIFFUSION ELECTRODE OF FUEL CELL

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a gas diffusion electrode in reduced production man-hour by coating an electrode substrate with the paste type slurry in which the carbon powder that should carry platinum, platinum compound, and PTFE are mixed simultaneously, reducing the platinum compound under reducing atmosphere, and heating-treating it up to the melting temperature of the PTFE.

CONSTITUTION: Carbon fine powder and platinum chloride acid are immersed in the mixed liquid of the ion exchange water containing a surface generation agent and dispersion liquid containing PTFE. Then while they are being water-cooled by water, they are kneaded for several hours using a kneader or a pulverizing mill and paste-type slurry is produced. The surface of an electrode substrate is coated uniformly with this slurry by the screen printing method or blade method and vacuum drying is performed to remove dispersion media. After that, hydrogen atmosphere is obtained and platinum chloride acid is reduced to platinum by hydrogen for approximately three hours at 300°C and a surface active agent is dissolved. Besides, the PTFE used as a bonding agent is melted and is baked in nitrogen atmosphere to increase the strength of a film.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

## ⑫ 公開特許公報(A)

昭60-133662

⑪ Int.Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 昭和60年(1985)7月16日

H 01 M 4/88

K-7623-5H

審査請求 未請求 発明の数 1 (全3頁)

⑭ 発明の名称 燃料電池のガス拡散電極の製造方法

⑮ 特 願 昭58-241624

⑯ 出 願 昭58(1983)12月21日

⑰ 発 明 者 桜 井 正 博 横須賀市長坂2丁目2番1号 株式会社富士電機総合研究所内

⑱ 出 願 人 株式会社富士電機総合研究所 横須賀市長坂2丁目2番1号

⑲ 代 理 人 弁理士 山 口 巖

## 明 細 書

1. 発明の名称 燃料電池のガス拡散電極の製造方法

2. 特許請求の範囲

1) 白金を担持すべき炭素粉末と白金化合物とポリテトラフルオロエチレンとを混合したペースト状スラリーを電極基材に塗布した後、還元性雰囲気中で前記白金化合物を還元し、さらに前記ポリテトラフルオロエチレンの融点以上の温度で焼成することを特徴とする燃料電池のガス拡散電極の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

〔発明の属する技術分野〕

本発明は燃料電池のガス拡散電極の製造方法に関する。

〔従来技術とその問題点〕

例えば磷酸を電解質とする燃料電池では、磷酸電解液を保持したマトリックスを挟持している空気などを用いる酸化剤側の電極と、水素に富むガスを用いる燃料ガス側の電極を備え、両電極はいずれも多孔性の炭素電極基材に触媒を担持した炭

素粉末を弗素樹脂で結合した触媒層を設けることにより、これら電極に供給され拡散する酸化剤ガスと燃料ガスが触媒および電解質の存在のもとに、電気化学的反応を連続的かつ安定に行わせることができる。

このような燃料電池のガス拡散電極を製造するに当たり、従来、0.01~1 $\mu$ m程度の粒径を有する炭素微粉末に例えば塩化白金酸などの白金化合物を加えた後、水素化ほう素ナトリウム、ホルマリン、ヒドラジンなどの溶液中で液相還元、あるいは水素雰囲気中で気相還元などの方法により、炭素微粉末上に白金の微細結晶を担持させた触媒粉末をつくり、この触媒粉末に結着剤および掘水剤として作用する例えばポリテトラフルオロエチレン(以下PTFEと称する)などの弗素樹脂粉末を均一に混合した混合体をスプレー法、印刷法、ドクターブレード法などを用いて、炭素繊維などからなる薄膜電極基材の上に塗布しこれを乾燥後、PTFEが溶融する温度340~390℃で焼成することにより作製されるのが普通である。

このようにして得られる従来のガス拡散電極を模式的な断面図で示すと第1図のごとくである。第1図における電極基材1は炭素繊維2などからなり、触媒層3は触媒を担持した炭素粉末の触媒粉4とPTFE5とからなっている。この電極の従来の製造方法は前述のように、炭素粉末に白金化合物水溶液を加えた後、還元性雰囲気中で白金化合物を還元することによつて、白金を担持した炭素触媒粉4を作製する工程と、この炭素触媒粉4と結着剤のPTFE5との分散混合体を電極基材1の上に薄膜状に塗布して焼成することにより、触媒層3を設ける工程との大別して二つの工程からなるが、これらを遂行するために含まれる個別の工程は、電極が完成するまでに約50工程を必要とし、電極の製造に多大の日数がかかるという欠点があった。

#### 〔発明の目的〕

本発明は燃料電池のガス拡散電極を製造するに際して、従来法に比べて簡素化し、著しく工数を低減した製造方法を提供することにある。

真空中で塗布膜の温度が30℃以上にならないように約20時間真空乾燥を行う。この際塗布膜が30℃以上に昇温すると塩化白金酸の分解が起り、白金の触媒活性を十分に引き出せなくなるのでこの点留意することが必要である。真空乾燥を終った電極は、雰囲気炉中に装入して、炉内を窒素などの不活性ガスで十分置換した後、水素雰囲気とし300℃で約3時間水素により、塩化白金酸を白金に還元すると同時に、界面活性剤の分解を行う。さらに結着剤として使用したPTFEを溶融させ、膜の強度をあげるため窒素雰囲気中350℃で10～15分間焼成することにより、本発明によるガス拡散電極が得られる。

以上のように本発明における電極製造過程が従来法と異なる所は白金を担持させた触媒粉を製造する過程がなく、初めから白金を担持すべき炭素粉末と塩化白金酸およびPTFEを同時に混合したスラリーを用いて、これを電極基材に塗布した後に還元処理して触媒層を設けており、従来法に比べて1工程を省いていることである。得られた電極

#### 〔発明の要点〕

本発明の燃料電池のガス拡散電極の製造方法は、白金を担持すべき炭素粉末と、白金化合物および結着剤のPTFEとを同時に混合したペースト状スラリーを電極基材に薄膜状に塗布した後、これを還元雰囲気中で白金化合物を還元するとともに、PTFEの溶融温度に加熱処理することにより、高性能ガス拡散電極が従来より非常に短縮された製造工数で達成されるものである。

#### 〔発明の実施例〕

以下本発明を実施例に基づき説明する。

先ず、平均粒子径0.3 $\mu$ mの炭素微粉末10grと塩化白金酸2.9grを、界面活性剤の入ったイオン交換水20mlと60重量%のPTFEを含む分散液11mlとの混合液中に浸漬した後、ニードまたは播種機などを用いて、水冷却しながら数時間混練してペースト状スラリーを作製する。このスラリーをスクリーン印刷法またはブレード法などにより、別途用意した電極基材上に0.1～0.15mmの厚さに均一に塗布し、分散媒体を除去するために

構造は第1図に示したのと同様のものが得られる。

第2図は本発明により作製された燃料電池の空気極の電圧電流特性を従来法により得られた電極との比較で示した線図である。第2図において曲線イは本発明による電極、曲線ロは従来法による電極を示しているが、曲線イと曲線ロとの比較からわかるように、本発明の方法を用いた電極の方が優れた電極特性を有する。このことについては、本発明者は、本発明の方法によれば、触媒白金の平均結晶子径が上記電極製造過程で成長することなく、微粒子となつていたので触媒活性が高いためであると思考している。

#### 〔発明の効果〕

以上実施例で説明したごとく燃料電池のガス拡散電極を製造するに際して、本発明によれば触媒層を形成するために、白金を担持した触媒粉を別途製作してこれをPTFEと混合して電極基材に塗布焼成するという従来工程に対して、触媒粉を別途製作することなく、触媒層の形成時に、炭素担体に白金触媒を担持させる工程をも含めてしま

ものである。すなわち、触媒粉の製作工程は、直接電極の触媒層の形成時に行われるから、従来の電極製造工程からみれば、大別して2工程必要な所を、本発明では1工程で済ませることができるので全電極製造工数として従来の約 $1/2$ に短縮され、工程が簡素化される。

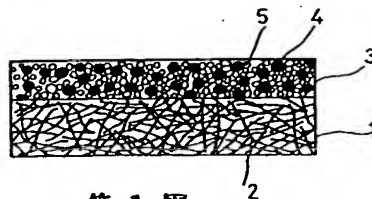
また第2図の空気極特性の比較線図に示したように、従来電極と同一電位では、本発明による電極は高い電流値となるから、それだけ大きな反応面積を有することとなり、したがって従来と同等の電極特性を得るためには、白金触媒の使用量を減らすことができるという経済的な効果を有する。

以上本発明の方法により得られる燃料電池のガス拡散電極は従来電極に比べて製造工数を $1/2$ とすることが可能であり、極めて経済性の高いものである。

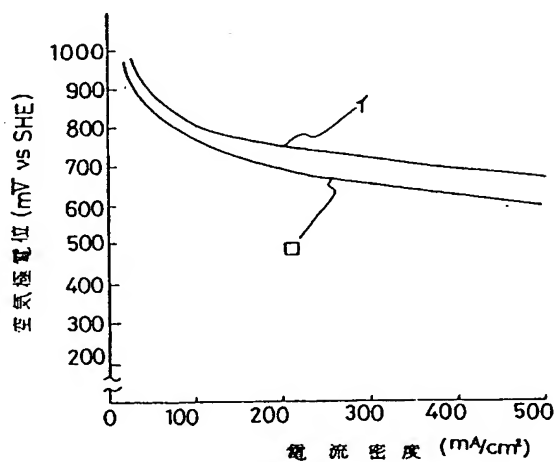
#### 4. 図面の簡単な説明

第1図は燃料電池のガス拡散電極の構成を示す模式的断面図、第2図は本発明による電極と従来電極との電圧電流特性の比較を示す線図である。

1 …… 電極基材、2 …… 炭素繊維、3 …… 触媒層、4 …… 触媒粉、5 …… PTFE。



第1図



第2図